

B-3

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-243001

(43)Date of publication of application : 29.08.2003

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

H01M 4/86

H01M 8/12

(21)Application number : 2002-036347

(71)Applicant : TOTO LTD

(22)Date of filing : 14.02.2002

(72)Inventor : HIWATARI KENICHI

(54) SOLID ELECTROLYTE FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To increase the electronic conductivity of an interconnector of a solid electrolyte fuel cell and to decrease the contact resistance between the interconnector and a current collecting material.

SOLUTION: This solid electrolyte fuel comprises a unit cell comprising an electrolyte, a fuel electrode arranged on one side of the electrolyte, and an air electrode arranged on the other side of the electrolyte; and the interconnector connected to the surface of the air electrode or the fuel electrode and having electric connection, and the interconnector comprises a first layer made of lanthanum chromite containing Ca or Sr in the form of a solid solution, represented by LaMCrO_3 (M is Ca or Sr) and a second layer made of a uniform mixture of LaMCrO_3 and NiO toward the fuel electrode from the air electrode.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号
特開2003-243001
(P2003-243001A)

(43)公開日 平成15年 8 月29日 (2003.8.29)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード*(参考)
H 0 1 M	8/02	H 0 1 M	8/02
	4/86		4/86
	8/12		8/12
			Y 5 H 0 1 8
			K 5 H 0 2 6
			T

審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 10 頁)

(21)出願番号 特願2002-36347(P2002-36347)

(22)出願日 平成14年 2 月14日 (2002. 2. 14)

(71)出願人 000010087

東陶機器株式会社

福岡県北九州市小倉北区中島 2 丁目 1 番 1 号

(72)発明者 樋渡 研一

福岡県北九州市小倉北区中島 2 丁目 1 番 1 号 東陶機器株式会社内

Fターム(参考) 5H018 AA06 AS02 AS03 BB12 CC03
EE12 EE13

5H026 AA06 BB01 CV02 EE12 EE13
HH08

(54)【発明の名称】 固体電解質型燃料電池

(57)【要約】

【課題】 固体電解質型燃料電池のインターコネクター電子導電性を高めることと、該インターコネクターと集電材間の接触抵抗の低減。

【解決手段】 電解質と、該電解質の片面に燃料極と、前記電解質の反対面に設けた空気極と、からなる単電池と、前記空気極または燃料極表面に接続され、電気的な接続を有するインターコネクターと、からなる固体電解質型燃料電池であって、前記インターコネクターが空気極側から燃料極側に向かって、 LaMCrO_3 (但し、 $\text{M}=\text{Ca}$, Sr のいずれか) で表される Ca または Sr を固溶させたランタクロマイトからなる第一の層と、前記 LaMCrO_3 と NiO が均一に混合された層からなる第二の層と、からなる固体電解質型燃料電池。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 電解質と、該電解質の片面に燃料極と、前記電解質の反対面に設けた空気極と、からなる単電池と、前記空気極または燃料極表面に接続され、電気的な接続の役割を有するインターコネクターと、からなる固体電解質型燃料電池であって、前記インターコネクターが空気極側から燃料極側に向かって、 LaMCrO_3 (但し、 $\text{M}=\text{Ca}, \text{Sr}$ のいずれか) で表される Ca または Sr を固溶させたランタンクロマイトからなる第一の層と、前記 LaMCrO_3 と NiO が均一に混合された層からなる第二の層と、からなることを特徴とする固体電解質型燃料電池。

【請求項 2】 電解質と、該電解質の片面に燃料極と、前記電解質の反対面に設けた空気極と、からなる単電池と、前記空気極または燃料極表面に接続され、電気的な接続の役割を有するインターコネクターと、からなる固体電解質型燃料電池であって、前記インターコネクターが空気極側から燃料極側に向かって、 LaMCrO_3 (但し、 $\text{M}=\text{Ca}, \text{Sr}$ のいずれか) で表される Ca または Sr を固溶させたランタンクロマイトからなる第一の層と、前記 LaMCrO_3 と NiO が均一に混合された層からなる第二の層と、 NiO からなる第三の層と、からなることを特徴とする固体電解質型燃料電池。

【請求項 3】 前記第二の層における NiO の重量比率が、10～95 重量%であることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の固体電解質型燃料電池。

【請求項 4】 前記重量比率が、50～95 重量%であることを特徴とする請求項 3 に記載の固体電解質型燃料電池。

【請求項 5】 前記燃料極は、 NiO とイットリアを固溶させたジルコニアが均一に混合された層または NiO とスカンジウムを固溶させたジルコニアが均一に混合された層のいずれかから構成されることを特徴とする請求項 1～4 のいずれか一項に記載の固体電解質型燃料電池。

【請求項 6】 前記空気極は、 Sr または Ca を固溶させたランタンマンガンナイトからなることを特徴とする請求項 1～5 のいずれか一項に記載の固体電解質型燃料電池。

【請求項 7】 前記電解質は、イットリアを固溶させたジルコニアまたはスカンジウムを固溶させたジルコニアからなることを特徴とする請求項 1～6 のいずれか一項に記載の固体電解質型燃料電池。

【請求項 8】 前記インターコネクターを空気極の表面に形成後、1350～1500℃で焼成させてなることを特徴とする請求項 1～7 のいずれか一項に記載の固体電解質型燃料電池。

【請求項 9】 前記インターコネクターを燃料極の表面に形成後、1350～1500℃で焼成させてなることを特徴とする請求項 1～7 のいずれか一項に記載の固体電解質型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、固体電解質型燃料電池に関する。特に、出力性能が高く、焼成コストが安価な固体電解質型燃料電池に関する。

【0002】

【従来の技術】 従来、特開平 11-144752 では固体電解質型燃料電池のインターコネクターとして、 Sr を固溶させたランタンクロマイトからなる層を提案している。

【0003】 特開平 6-302326 では固体電解質型燃料電池のインターコネクターとして、 Ca を固溶させたランタンクロマイトからなる層を提案している。

【0004】 また、特開平 4-282566 ではインターコネクター部での出力ロスを低減させるために空気極側から燃料極側へ耐酸化性セラミックスからなる層と、耐還元性金属からなる層と、からなるインターコネクターを提案している。耐酸化セラミックスからなる層の例として、 LaCrO_3 を、耐還元性金属からなる層の例として金属 Ni が挙げられている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 Ca または Sr を固溶させたランタンクロマイトの単層を固体電解質型燃料電池のインターコネクターとして用いると燃料雰囲気下で電子導電性が低下することによって、燃料極側の集電材との接触抵抗が大きくなり、出力性能が低下するという問題があった。

【0006】 また、燃料極側の集電材との接触抵抗を低減させるために燃料極側に金属ニッケル層を設ける場合、金属ニッケルは大気雰囲気下で焼成すると酸化されてしまうため、還元雰囲気下で焼成を行わなければならない、焼成コストが高くなるという問題があった。

【0007】 そこで、本発明はインターコネクターの電子導電性が高く、集電材との接触抵抗が小さく、さらに焼成コストが安価な固体電解質型燃料電池を提供することを目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】 上記目的を達成するため第 1 の発明は、電解質と、該電解質の片面に燃料極と、前記電解質の反対面に設けた空気極と、からなる単電池と、前記空気極または燃料極表面に接続され、電気的な接続の役割を有するインターコネクターと、からなる固体電解質型燃料電池であって、前記インターコネクターが空気極側から燃料極側に向かって、 LaMCrO_3 (但し、 $\text{M}=\text{Ca}, \text{Sr}$ のいずれか) からなる第一の層と、前記 LaMCrO_3 と NiO が均一に混合された層 (以下、 $\text{NiO}/\text{LaMCrO}_3$ と示す。) からなる第二の層と、からなることを提供する。

【0009】 本発明によれば、インターコネクターの燃料極側を $\text{NiO}/\text{LaMCrO}_3$ にしたので、焼成コストが安価で、出力性能が高い固体電解質型燃料電池を提供することができる。

【0010】焼成コストが安価な理由は、大気雰囲気下の焼成でガス透過性の無いインターコネクターを作製することができるためである。

【0011】ここで示すガス透過性の無いインターコネクターとは、インターコネクターの片面とその反対側面の間に圧力差を設け、その間を透過するガス透過量で評価され、ガス透過量 $Q \leq 2.8 \times 10^{-9} \text{ms}^{-1} \text{Pa}^{-1}$ (より好ましくは $Q \leq 2.8 \times 10^{-10} \text{ms}^{-1} \text{Pa}^{-1}$) であるものを指す。

【0012】出力性能が高くなる理由は、第二の層においてNiOが含まれ、該NiOが燃料電池の運転中に金属Niに変化し、インターコネクターの電子導電性が高くなるためである。

【0013】上記目的を達成するため第2の発明は、電解質と、該電解質の片面に燃料極と、前記電解質の反対面に設けた空気極と、からなる単電池と、前記空気極または燃料極表面に接続され、電気的な接続の役割を有するインターコネクターと、からなる固体電解質型燃料電池であって、前記インターコネクターが空気極側から燃料極側へ向かって、 LaMCrO_3 (但し、 $M=\text{Ca}, \text{Sr}$ のいずれか) からなる第一の層と、 $\text{NiO}/\text{LaMCrO}_3$ からなる第二の層と、 NiO からなる第三の層と、からなるからなることを提供する。

【0014】本発明によれば、さらにNiOからなる第三の層を設けたので焼成コストが安価で、より出力性能が高い固体電解質型燃料電池を提供することができる。

【0015】焼成コストが安価な理由は、大気雰囲気下の焼成でガス透過性の無いインターコネクターを作製することができるためである。

【0016】出力性能がより高くなる理由は、 $\text{NiO}/\text{LaMCrO}_3$ からなる第二の層より、 NiO からなる第三の層の方が、運転中において金属Ni成分が多くなるので、インターコネクターの電子導電性がさらに高くなるためである。また、燃料極側がNiOからなる層であるとNiOが燃料電池の運転においてNiに変わるので、集電剤との接触抵抗が小さくなり、集電材との間にメタライズ処理が不要となるためである。

【0017】また、 LaMCrO_3 からなる第一の層と、 NiO からなる第三の層との間に $\text{NiO}/\text{LaMCrO}_3$ からなる第二の層を設けた方が好ましい理由は、該第二の層がないと LaMCrO_3 と NiO の熱膨張差および焼成収縮差が大きいことによる各層の間で剥がれが生じるためである。

【0018】上記目的を達成するため第3の発明は、第二の層におけるNiOの重量比率が、10～95重量%であることを提供する。

【0019】本発明によれば、第二の層の重量比率に制限を設けたので出力性能が高い固体電解質型燃料電池を提供することができる。

【0020】NiOの重量比率が10重量%未満では、NiOの重量比率が小さすぎて、インターコネクターの電子導電性が高くないためである。一方、NiOの重量比率が9

5%より大きいと空気極側に設けられた LaMCrO_3 からなる第一の層と熱膨張および焼成収縮の差が大きく、第一の層との間で剥がれを生じるためである。

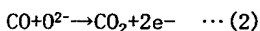
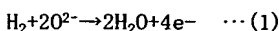
【0021】上記目的を達成するため第4の発明は、第二の層におけるNiOの重量比率が、50～95重量%であることを提供する。

【0022】NiOの重量比率が50重量%より小さいものを燃料極側の最上層に設けると、集電材として使用される金属Niとの接触抵抗が大きくなり、出力性能が低下するためである。10～50重量%を燃料側の最上層に設ける場合は、集電材との間に金属層を設けることが好ましい。

【0023】上記目的を達成するため第5の発明は、燃料極が、NiOとイットリアを固溶させたジルコニアが均一に混合された層 (以下、 NiO/YSZ と示す。) またはNiOとスカンジウムを固溶させたジルコニアが均一に混合された層 (以下、 NiO/SSZ と示す。) のいずれかから構成されることを提供する。

【0024】本発明によれば燃料極として NiO/YSZ 、または NiO/SSZ のいずれかから構成されたものなので出力性能が高く、耐久性に優れた固体電解質型燃料電池を提供することができる。

【0025】この理由は、電子導電性が高いNi成分と酸素イオン導電性が高いイットリアを固溶させたジルコニアまたはスカンジウムを固溶させたジルコニアからなるので電解質と燃料極で起こる(1)および(2)式に示す電極反応が促進されるためである。

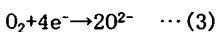


【0026】また、イットリアを固溶させたジルコニアまたはスカンジウムを固溶させたジルコニアが混合されているので運転時に起こるNiの凝集を抑制することができ、耐久性を高めることができるためである。

【0027】上記目的を達成するため第6の発明は、空気極は、SrまたはCaを固溶させたランタンマンガンナイトからなることを提供する。

【0028】本発明によれば空気極としてSrまたはCaを固溶させたランタンマンガンナイトとしたので出力性能が高い固体電解質型燃料電池を提供することができる。

【0029】この理由は、SrまたはCaを固溶させたランタンマンガンナイトは電子導電性が高く、酸素イオン導電性が高いため、空気極と電解質で起こる(3)式の電極反応が効率よく行われるためである。



【0030】上記目的を達成するため第7の発明は、電解質が、イットリアを固溶させたジルコニア (以下、 YSZ と示す) またはスカンジウムを固溶させたジルコニア (以下、 SSZ と示す) からなることを提供する。

【0031】本発明によれば電解質として YSZ または SSZ としたので出力性能が高い固体電解質型燃料電池を提供

することができる。

【0032】この理由は、SSZについては酸素イオン導電性が高いため、YSZについてはSSZより酸素イオン導電性は低下するものの焼結性が高いため電解質の膜厚を薄くしてもガス透過性の無い電解質を作製することができるためである。

【0033】ここで示すガス透過性の無い電解質とは、電解質の片面とその反対側面の間に圧力差を設け、その間を透過するガス透過量で評価され、ガス透過量 $Q \leq 2.8 \times 10^{-9} \text{ms}^{-1} \text{Pa}^{-1}$ (より好ましくは $Q \leq 2.8 \times 10^{-10} \text{ms}^{-1} \text{Pa}^{-1}$) であるものを指す。

【0034】上記目的を達成するため第8の発明は、インターコネクタを空気極の表面に形成後、1350～1500℃で焼成させてなることを提供する。

【0035】本発明によれば、インターコネクタを空気極の表面に形成後、1350～1500℃で焼成させることによって、ガス透過性の無いインターコネクタを作製し、かつ出力性能が高い固体電解質型燃料電池を提供することができる。

【0036】この理由は、1350℃未満の焼成では焼成温度が低すぎて、ガス透過性の無いインターコネクタを作製することができないため、一方1500℃より高い焼成では空気極とインターコネクタ間の反応性が高まり、出力性能を低下させるためである。

【0037】上記目的を達成するため第9の発明は、インターコネクタを燃料極の表面に形成後、1350～1500℃で焼成させてなることを提供する。

【0038】本発明によれば、インターコネクタを燃料極の表面に形成後、1350～1500℃で焼成させることによって、ガス透過性の無いインターコネクタを作製し、かつ出力性能が高い固体電解質型燃料電池を提供することができる。

【0039】この理由は、1350℃未満の焼成では焼成温度が低すぎて、ガス透過性の無いインターコネクタを作製することができないため、一方1500℃より高い焼成では燃料極とインターコネクタ間の反応性が高まり、出力性能を低下させるためである。

【0040】

【発明の実施形態】本発明における固体電解質型燃料電池について図1を用いて説明する。図1は、円筒タイプの固体電解質型燃料電池の断面を示す図である。円筒状の空気極支持体1上に帯状のインターコネクタ2、電解質3、さらに電解質3の上にインターコネクタ2と接触しないように燃料極膜4が構成されている。空気極支持体の内側にAirを流し、外側に燃料を流すとAir中の酸素が空気極と電解質の界面で酸素イオンに変わり、この酸素イオンが電解質を通して燃料極に達する。そして、燃料ガスと酸素イオンが反応して水および二酸化炭素になる。これらの反応は前記(1)～(3)式で示される。燃料極4とインターコネクタ2を接続することによ

て外部へ電気を取り出すことができる。

【0041】図2は固体電解質型燃料電池の集電方法に関する図である。インターコネクタ2と集電板6、燃料極4とインターコネクタ2、および燃料極4と集電板6の間に集電材であるニッケルフェルト5を介して電気を取り出している。

【0042】図1、図2に示すようにインターコネクタは空気極と燃料極の両雰囲気にさらされる。また、燃料極と比較して面積が小さく、ここに燃料電池の電極反応で生成した電子すべてが通過する。それゆえ、インターコネクタには以下のことが要求される。

(1) ガス透過性がないこと：空気と燃料が混ざると発電に寄与する燃料が減少し、出力性能が低下する。ガス透過性としては、ガス透過量 $Q \leq 2.8 \times 10^{-9} \text{ms}^{-1} \text{Pa}^{-1}$ (より好ましくは $Q \leq 2.8 \times 10^{-10} \text{ms}^{-1} \text{Pa}^{-1}$) が好ましい。

(2) 電子導電性が高いこと：電子導電性が低いとインターコネクタの内部抵抗が大きくなり、出力性能が低下する。電子導電率としては、 10Scm^{-1} 以上が好ましい。

(3) 集電材との接触抵抗が小さいこと：集電材との接触抵抗が大きいとジュール熱損失によって、出力性能が低下する。集電材とインターコネクタの界面における導電率は、 20Scm^{-2} 以上(より好ましくは 50Scm^{-2} 以上)が好ましい。

(4) 酸素イオン導電性がないこと

(5) 高温下で空気と燃料の両雰囲気に対して安定である

(6) 他の構成部材と反応しないこと

(7) 熱膨張係数が他材料と一致することが挙げられる。

【0043】これらの要求特性から、インターコネクタとして適した材料は LaCrO_3 で表されるランタンクロマイトである。 LaCrO_3 は難焼結性材料であるため1700℃以上の高温でないとガス透過性の無いものを作製することができない。それゆえ、Ca、Srのいずれかを固溶させ、 LaMCrO_3 で表されるものが好ましい。しかし、 LaMCrO_3 は燃料雰囲気で電子導電性が低下し、集電材であるNiフェルトとの接触抵抗が大きくなり、出力性能が低下する。それゆえ、燃料雰囲気で電子導電性を向上させ、インターコネクタでの出力の低下を抑制するためには、燃料極側にNiO/ LaMCrO_3 (NiOは、燃料雰囲気で金属Niに変わる) からなる層を設けることが好ましい。

【0044】また、集電材との接触抵抗が小さいほど出力性能が低下を抑えられるので、燃料側にさらにNiOからなる層を設けることが好ましい。

【0045】本発明の第一の層における LaMCrO_3 は、第二の層におけるNiOが酸化雰囲気さらされると電子導電性が低下するので第一の層のみでガス透過性がないものを形成させることが好ましい。それゆえ、ガス透過性のない第一の層を作製するために、第一の層にはCo、Cu、Alなどの焼結助剤成分が含まれていても良い。

【0046】本発明の第一の層における LaMgCrO_3 のMとしては、SrよりCaである方がより好ましい。この理由は、Srのタイプより低温でガス透過性の無いインターコネクターを作製することができるためである。また、Caの固溶量は LaMgCrO_3 100モル%に対して、10～40モル%であることが好ましい。Caの固溶量が10モル%より小さいと焼結助剤である $\text{Ca}_m\text{Cr}_n\text{O}_4$ で表されるカルシウムクロメイト成分が少ないため、燃料電池の他材料と同一温度でガス透過性のないインターコネクターを作製することができないためである。一方、Caの固溶量が40モル%より大きいと材料の耐久性が低下し、長時間運転において出力性能が低下するためである。

【0047】本発明の $\text{NiO}/\text{LaMgCrO}_3$ からなる第二の層における NiO の重量比率は、第一の層との密着性と燃料側の電子導電性向上の観点から、傾斜させた構造であっても良い。例えば、空気側から燃料側へ NiO の比率が20, 50, 80重量%となるような構造であっても良い。

【0048】本発明の第一の層における LaMgCrO_3 における原料作製法については、ガス透過性が無く、空気極との密着性が良いものであれば良く特に限定はない。噴霧熱分解法、粉末混合法、クエン酸塩法、共沈法などが挙げられる。均一な組成でかつ焼結性の高い粉末が得られるという観点から噴霧熱分解法、クエン酸塩法が好ましい。

【0049】本発明の第三の層における NiO 粉末の作製法については、第二の層と集電材との密着性が良ければ良く、特に限定はない。水酸化ニッケルから作製する方法や硫酸ニッケルから作製する方法を挙げることができる。低コストという観点からは、水酸化ニッケルから作製する方法が好ましい。

【0050】本発明における $\text{NiO}/\text{LaMgCrO}_3$ の作製法については、第一の層との密着性が良く、燃料雰囲気下で電子導電性が高いものであれば良く特に限定はない。 LaMgCrO_3 と NiO 粉末を別々に作製したものを所定の混合比で混ぜ、スプレードライ法で作製する粉末混合法やLa, Mg, Cr, Niの各々の硝酸塩から噴霧熱分解法で作製する液相法などが挙げられる。

【0051】本発明におけるインターコネクターの作製方法については特に限定はない。インターコネクター以外の部分をマスキングして、第一の層、と第二の層と、第三の層をスラリーコート法で成膜し、デマスクし、焼成する方法や、第一の層と、第二の層と、第三の層をペットフィルム上に印刷したものを直接空気極表面に貼りつけて焼成する方法(以下、シート接着法と示す。)などが挙げられる。マスキング、デマスク工程が無く、低コストであるという観点からはシート接着法が好ましい。

【0052】本発明におけるインターコネクターを図1に示す円筒タイプの固体電解質型燃料電池に採用した場合、電池の反りを小さくすることができ、モジュール発電に際して好ましい。反りを小さくできる理由は、イン

ターコネクターに NiO が含まれるので燃料極との熱膨張および焼成収縮差が小さくなるためである。また、反りが小さいとモジュールに際して好ましいのは、所定の面積により多くの電池を収納することができ、高出力の発電をすることができるためである。

【0053】本発明における燃料極は固体電解質型燃料電池の発電温度の燃料雰囲気において電子導電性が高い、燃料ガス透過性が高い、(1)および(2)の反応が効率良く行われることが要求される。この観点から NiO/YSZ または、 NiO/SSZ からなることが好ましい。なお、 NiO は固体電解質型燃料電池の運転雰囲気下で還元されて Ni となり、該層は Ni/YSZ または Ni/SSZ からなる。

【0054】また、本発明における燃料極として、 NiO とCaを固溶させたジルコニアが均一に混合された層からなるものであっても良い。この理由は、Caを固溶させたジルコニアは、YSZやSSZと比較してコストが安価であり、本材料を採用すれば固体電解質型燃料電池のコストを下げるができるためである。

【0055】電解質側の燃料極は、(1)と(2)の反応を効率よく行うため酸素イオン導電性と電子導電性を有するものであることが好ましい。この観点から NiO/YSZ または NiO/SSZ における NiO の重量比率が10～50重量部であることが好ましい。

【0056】燃料側の燃料極は、電子導電性が高く、燃料ガス透過性が高く、集電材との接触抵抗が小さいものであることが好ましい。この観点から NiO/YSZ または、 NiO/SSZ における NiO の重量比率は50重量%以上で、且つ平均粒子径が0.5～10 μm 粉末から構成させたものであることが好ましい。

【0057】燃料極原料の合成法については NiO とイットリアを固溶させたジルコニアまたは NiO とスカンジウムを固溶させたジルコニアが均一に混合されていれば良く特に限定はない。共沈法、スプレードライ法などが挙げられる。

【0058】本発明における空気極は固体電解質型燃料電池の発電温度の空気雰囲気において電子導電性が高い、酸素ガス透過性が高い、(3)式の反応が効率よく行われることが要求される。この観点からはSrまたはCaを固溶させたランタンマンガンナイトが好ましい。

【0059】SrまたはCaを固溶させたランタンマンガンナイトには、前記空気極の要求特性を向上させるために、Ce, Sm, Gd, Pr, Ndなどをさらに固溶させたものであっても良い。

【0060】ランタンマンガンナイトの空気極原料の作製法については特に限定はない。粉末混合法、共沈法、噴霧熱分解法、ゾルゲル法などで作製する方法が挙げられる。

【0061】本発明の空気極において、インターコネクターが成膜される部分については、SrまたはCaを固溶させたランタンマンガンナイト組成で、ガス透過性の低い緻

密空気極を設けることが好ましい。この理由は、インターコネクターの第一の層である LaMgCrO_3 は、焼成において $\text{Ca}_m\text{Cr}_n\text{O}_4$ または $\text{Sr}_m\text{Cr}_n\text{O}_4$ で表される液相成分が焼結助剤として作用し、ガス透過性の無いインターコネクターを作製するが、空気極が多孔質であるとの液相成分が空気極に拡散し、ガス透過性の無いインターコネクターを作製できないためである。

【0062】ここで示すガス透過性の低い緻密空気極とは、緻密空気極の片面とその反対側面の間に圧力差を設け、その間を透過するガス透過量で評価され、ガス透過量 $Q \leq 2.8 \times 10^{-7} \text{ms}^{-1} \text{Pa}^{-1}$ であるものを指す。

【0063】本発明における電解質は、固体電解質型燃料電池の発電温度で空気雰囲気および燃料ガス雰囲気において、酸素イオン導電性が高いこと、ガス透過性が無いこと、電子導電性がないことが要求される。この観点からYSZあるいはSSZが好ましい。

【0064】また、本発明における電解質として、CaOを固溶させたジルコニアであっても良い。この理由は、CaOを固溶させたジルコニアは、YSZあるいはSSZよりコストが低く、本材料を採用すれば固体電解質型燃料電池のコストを低下させることができるためである。

【0065】本発明における電解質において、YSZにおけるイットリアの固溶量については、酸素イオン導電性が高く、発電温度で結晶相が安定であるものであれば良い。この観点からジルコニア100mol%に対して、3~15mol% (より好ましくは8~14mol%) が好ましい。

【0066】本発明における電解質において、SSZにおけるスカンジウムの固溶量については、酸素イオン導電性が高く、発電温度で結晶相が安定であるものであれば良い。この観点からジルコニア100mol%に対して、3~15mol% (より好ましくは8~14mol%) が好ましい。

【0067】本発明における電解質には CeO_2 、 Sm_2O_3 、 Gd_2O_3 などをジルコニア100 mol%に対して5mol%以下固溶させたものであっても良い。特にSSZにおいてはこれらの組成を微量含んでいた方が酸素イオン導電性が高くなることから含んでいる方が好ましい。また、ガス透過の無いものを作製するために焼結助剤を微量添加させても良い。焼結助剤としては Al_2O_3 、 SiO_2 などを挙げることができる。

【0068】本発明における電解質の作製法については特に限定はないが量産性に優れ、低コストであるという観点からスラリーコート法、スクリーン印刷法、シート接着法が好ましい。

【0069】本発明における電解質膜原料の作製法についてはイットリアおよびスカンジウムの固溶を均一にできる方法であれば良く特に限定はない。共沈法が一般的である。

【0070】本発明における固体電解質型燃料電池の形状については特に限定はなく、平板型、円筒型いずれであっても良い。

【0071】

【実施例】 (実施例1) 図1に示す円筒型固体電解質型燃料電池に用いた。すなわち、円筒状の空気極支持体1上に帯状のインターコネクター2、電解質3、さらに電解質の上にインターコネクターと接触しないように燃料極4から構成されたものを用いた。

【0072】 (1) 空気極支持体の作製

空気極組成としては、 $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$ で表されるSrを固溶させたランタンマンガンナイトで、共沈法で作製後熱処理して空気極原料粉末を得た。平均粒子径は、 $30 \mu\text{m}$ であった。該粉末を押し出し成形法によって円筒状成形体を作製した。さらに、 1500°C で焼成を行い、空気極支持体とした。

【0073】 (2) 緻密空気極の作製

緻密空気極の組成としては空気極と同様の $\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$ 組成で、共沈法で作製後、熱処理して原料粉末を得た。平均粒子径は $2 \mu\text{m}$ であった。該粉末は、該粉末40重量部を溶媒(エタノール)100重量部、バインダー(エチルセルロース)2重量部、分散剤(ポリオキシエタレンアルキルソルホン酸エステル)1重量部、消泡剤(ソルビタンセスキオレート)1重量部とを混合した後、十分攪拌してスラリーを調整した。このスラリー粘度は70 mPasであった。前記スラリーを、空気極支持体(外径15 mm、肉厚1.5 mm、有効長400 mm)表面のインターコネクターが成膜される部分にスラリーコート法で成膜した後に 1400°C で焼結させた。得られた緻密空気極の厚みは $50 \mu\text{m}$ であった。なお、後工程で電解質を成膜する部分についてはマスキングを施し、膜が塗布されないようにしておいた。

【0074】 (3) 電解質の作製：電解質としては、YSZを用い、該組成は、90 mol% ZrO_2 -10mol% Y_2O_3 で、共沈法で作製後、熱処理して電解質用粉末を得た。平均粒子径を $0.5 \mu\text{m}$ とした。該粉末40重量部を溶媒(エタノール)100重量部、バインダー(エチルセルロース)2重量部、分散剤(ポリオキシエタレンアルキルソルホン酸エステル)1重量部、消泡剤(ソルビタンセスキオレート)1重量部とを混合した後、十分攪拌してスラリーを調整した。このスラリー粘度は140 mPasであった。該スラリーを用いて電解質を成膜し、 1400°C で焼成した。得られた電解質の厚さは、 $50 \mu\text{m}$ であった。なお、後工程でインターコネクターを成膜する部分についてはマスキングを施し、膜が塗布されないようにしておいた。

【0075】 (4) 燃料極の作製

燃料極としては、NiO/YSZを用いた。YSZの組成は、90 mol% ZrO_2 -10mol% Y_2O_3 とし、NiO/YSZの重量比率(粉末の平均粒子径)は、電解質側から燃料方向へNiO/YSZ(平均粒子径)=20/80($0.5 \mu\text{m}$)、50/50($0.5 \mu\text{m}$)、70/30($2 \mu\text{m}$)とした。各々の粉末は、共沈法で作製後熱処理をして得た。これらの粉末100重量部と有機溶媒(エタノール)500重量部、バインダー(エチル

セルロース) 10重量部、分散剤(ポリオキシエタレンアルキルリン酸エステル) 5重量部、消泡剤(ソルビタンセソオキオレート) 1重量部、可塑剤(DBP) 5重量部を混合した後、十分攪拌してスラリーを調整した。このスラリーの粘度は70mPasであった。燃料極の面積が150cm²になるように電解質表面にマスキングをし、NiO/YSZ=20/80, 50/50, 70/30の順にスラリーコート法により成膜しデマスク後、1420℃で焼成した。膜厚(焼成後)は100μmであった。

【0076】(5) インターコネクターの原料作製：第一の層は、La_{0.8}Ca_{0.2}CrO₃組成であり、噴霧熱分解法で合成後、熱処理をして作製した。平均粒子径1μmとした。第二の層の組成およびその重量比率は、NiO/ La_{0.8}Ca_{0.2}CrO₃=50/50であり、水酸化ニッケルから作製したNiO粉末と噴霧熱分解法で作製したLa_{0.8}Ca_{0.2}CrO₃粉末を水で分散させた後、スプレードライ法で粉末混合し、さらに熱処理をして得た。得られた粉末の平均粒子径は1μmであった。

【0077】(6) インターコネクタースラリーの作製粉末40重量部を溶媒(エタノール) 100重量部、バインダー(エチルセルロース) 2重量部、分散剤(ポリオキシエタレンアルキルリン酸エステル) 1重量部、消泡剤(ソルビタンセソオキオレート) 1重量部とを混合した後、十分攪拌してスラリーを調整した。このスラリー粘度は100mPasであった。

【0078】(7) インターコネクターの作製緻密空気極上に成膜できるようにマスキングを行った後、緻密空気極表面にLa_{0.8}Ca_{0.2}CrO₃、NiO/ La_{0.8}Ca_{0.2}CrO₃=50/50の順にスラリーコート法で成膜しデマスク後、さらに1400℃で焼成した。焼成後の厚みは50μm(第一の層：40μm、第二の層：10μm)であった。

【0079】(8) 発電試験
得られた固体電解質型燃料電池(燃料極有効面積：150cm²)に対して、図2に示すようにインターコネクタ-2と燃料極4と集電板6の間にNiフェルト5を挟ん

で、発電試験を行った。このときの運転条件は以下であった。

①燃料：(H₂+11%H₂O)：N₂ = 1：2

②酸化剤：Air

③発電温度：1000℃

④電流密度：0.3Acm⁻²

【0080】(9) ガス漏れ試験

発電試験前に空気極支持体内部に窒素ガスを流し、空気極内部から0.1MPaの圧力を加え。インターコネクタ-を透過するガス透過量を測定した。これによりインターコネクタ-がガス透過性の無いものであるかを評価した。

【0081】(実施例2) インターコネクタ-において、水酸化ニッケルから作製したNiO粉末(平均粒子径1.5μm)から第三の層を作製した。緻密空気極表面にLa_{0.8}Ca_{0.2}CrO₃、NiO/ La_{0.8}Ca_{0.2}CrO₃=50/50、NiOの順にスラリーコート法で成膜し、1400℃で焼成すし、焼成後の厚みが55μm(第一の層：40μm、第二の層：10μm、第三の層：5μm)であること以外は実施例1と同様とした。

【0082】(実施例3) インターコネクタ-において、緻密空気極表面にLa_{0.7}Sr_{0.3}CrO₃、NiO/ La_{0.7}Sr_{0.3}CrO₃=50/50、NiOの順にスラリーコート法で成膜し、1400℃で焼成し、焼成後の厚みが55μm(第一の層：40μm、第二の層：10μm、第三の層：5μm)であること以外は実施例1と同様とした。

【0083】(比較例1) インターコネクタ-において、緻密空気極表面にLa_{0.8}Ca_{0.2}CrO₃をスラリーコート法で成膜し、1400℃で焼成し、焼成後の厚みが40μmであること以外は実施例1と同様とした。

【0084】(比較例2) インターコネクタ-において、緻密空気極表面にLa_{0.7}Sr_{0.3}CrO₃をスラリーコート法で成膜し、1400℃で焼成し、焼成後の厚みが40μmであること以外は実施例1と同様とした。

【0085】

【表1】

	インターコネクタ-構成 (緻密空気極側から順に)	出力 (W)	ガス透過量Q (10 ⁻¹⁰ ms ⁻¹ Pa ⁻¹)
実施例1	La _{0.8} Ca _{0.2} CrO ₃ 、NiO/ La _{0.8} Ca _{0.2} CrO ₃ =50/50	30	1.5
実施例2	La _{0.8} Ca _{0.2} CrO ₃ 、NiO/ La _{0.8} Ca _{0.2} CrO ₃ =50/50、NiO	31	1.0
実施例3	La _{0.7} Sr _{0.3} CrO ₃ 、NiO/ La _{0.7} Sr _{0.3} CrO ₃ =50/50、NiO	30.5	10.0
比較例1	La _{0.8} Ca _{0.2} CrO ₃	21	2.0
比較例2	La _{0.7} Sr _{0.3} CrO ₃	20	15.0

【0086】表1に発電試験結果を示す。実用電池としての目標出力は出力密度0.18Wcm⁻²以上なので本試験では27W以上である。出力の結果から、実施例1～3は実用電池としての出力性能以上であるが、比較例1, 2では実用電池としての出力性能を大きく下回った。また、インターコネクタ-のガス透過量Qは、Q≤2.8×10⁻⁹ms⁻¹Pa⁻¹が目標値であるが、いずれの条件においても目標値以上のガス透過性を有していることが確認された。これ

らの結果から、インターコネクタ-を実施例1～3の構造にすることで、燃料雰囲気での導電率の向上とNiフェルトとの接触抵抗が抑えられることによって出力性能が向上することが確認された。

【0087】第二の層におけるNiO比率について

(実施例4) インターコネクタ-において、緻密空気極表面にLa_{0.8}Ca_{0.2}CrO₃、NiO/ La_{0.8}Ca_{0.2}CrO₃=10/90の順にスラリーコート法で成膜し、1400℃で焼成し、焼成

後の厚みが50 μ m(第一の層:40 μ m、第二の層:10 μ m)であること以外は実施例1と同様とした。

【0088】(実施例5)インターコネクタにおいて、緻密空気極表面に $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=10/90$ 、NiOの順にスラリーコート法で成膜し、1400℃で焼成し、焼成後の厚みが55 μ m(第一の層:40 μ m、第二の層:10 μ m、第三の層:5 μ m)であること以外は実施例1と同様とした。

【0089】(実施例6)インターコネクタにおいて、緻密空気極表面に $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=30/70$ の順にスラリーコート法で成膜し、1400℃で焼成し、焼成後の厚みが50 μ m(第一の層:40 μ m、第二の層:10 μ m)であること以外は実施例1と同様とした。

【0090】(実施例7)インターコネクタにおいて、緻密空気極表面に $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=30/70$ 、NiOの順にスラリーコート法で成膜し、1400℃で焼成し、焼成後の厚みが55 μ m(第一の層:40 μ m、第二の層:10 μ m、第三の層:5 μ m)であること以外は実施例1と同様とした。

【0091】(実施例8)インターコネクタにおいて、緻密空気極表面に $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=70/30$ の順にスラリーコート法で成膜し、1400℃で焼成し、焼成後の厚みが50 μ m(第一の層:40 μ m、第二の層:10 μ m)であること以外は実施例1と同様とした。

【0092】(実施例9)インターコネクタにおいて、緻密空気極表面に $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=70/30$ 、NiOの順にスラリーコート法で成膜し、

1400℃で焼成し、焼成後の厚みが55 μ m(第一の層:40 μ m、第二の層:10 μ m、第三の層:5 μ m)であること以外は実施例1と同様とした。

【0093】(実施例10)インターコネクタにおいて、緻密空気極表面に $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=95/5$ の順にスラリーコート法で成膜し、1400℃で焼成し、焼成後の厚みが50 μ m(第一の層:40 μ m、第二の層:10 μ m)であること以外は実施例1と同様とした。

【0094】(実施例11)インターコネクタにおいて、緻密空気極表面に $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=95/5$ 、NiOの順にスラリーコート法で成膜し、1400℃で焼成し、焼成後の厚みが55 μ m(第一の層:40 μ m、第二の層:10 μ m、第三の層:5 μ m)であること以外は実施例1と同様とした。

【0095】(比較例3)インターコネクタにおいて、緻密空気極表面に $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=5/95$ の順にスラリーコート法で成膜し、1400℃で焼成し、焼成後の厚みが50 μ m(第一の層:40 μ m、第二の層:10 μ m)であること以外は実施例1と同様とした。

【0096】(比較例4)インターコネクタにおいて、緻密空気極表面に $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=97/3$ 、NiOの順にスラリーコート法で成膜し、1400℃で焼成し、焼成後の厚みが50 μ m(第一の層:40 μ m、第二の層:10 μ m)であること以外は実施例1と同様とした。

【0097】

【表2】

	インターコネクタ構成 (緻密空気極側から順に)	出力(W)	ガス透過量Q ($\times 10^{-10} \text{mol} \cdot \text{Pa}^{-1}$)
実施例4	$\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=10/90$	27	0.5
実施例5	$\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=10/90$ 、NiO	30	0.4
実施例6	$\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=30/70$	28	0.8
実施例7	$\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=30/70$ 、NiO	30.5	0.7
実施例8	$\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=70/30$	31	1.5
実施例9	$\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=70/30$ 、NiO	31	1.2
実施例10	$\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=95/5$	31	1.8
実施例11	$\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=95/5$ 、NiO	31	1.5
比較例3	$\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=5/95$	23	0.5
比較例4	$\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3$ 、NiO/ $\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{CrO}_3=97/3$	21	3.0

【0098】表2に発電試験結果およびインターコネクタのガス透過量を示す。ガス透過量についてはすべての条件において目標値より優れているが、出力においては実施例4～11では27W以上であるのに対し、比較例3、4では27Wを下回る結果となった。比較例3については、第二の層におけるNi量が少ないため燃料側の導電率が低いこととNiフェルトとの接触抵抗が大きいことが原因で出力性能が低下したためである。一方、比較例4では第一の層と第二の層との密着性が低いことによってインターコネクタの内部抵抗が大きくなったことが出力性能が低下した原因である。以上の結果から、第二

の層におけるNiOの重量比率は、10～95重量%の範囲であることが好ましいことが確認された。さらに、実施例4～11(表1の実施例1、2も含む)においては、第二の層までのものと第三の層まで設けたもので出力性能を比較している。第二の層におけるNiOの割合が10、30である実施例4、6では、第三の層を設けた場合の実施例5、7と比較して性能差が見られるのに対して、NiOの多いものではほとんど差が認められないのがわかる。この結果から、第二の層におけるNiOの重量比率は、50～95重量%の範囲であることがより好ましいことが確認された。

【0099】インターコネクター焼成温度の効果について

(実施例12) インターコネクターにおいて、緻密空気極表面に $\text{La}_{0.80}\text{Ca}_{0.20}\text{CrO}_3$ 、 $\text{NiO}/\text{La}_{0.80}\text{Ca}_{0.20}\text{CrO}_3=50/50$ 、 NiO の順にスラリーコート法で成膜し、1350℃で焼成し、焼成後の厚みが55μm(第一の層:40μm、第二の層:10μm、第三の層:5μm)であること以外は実施例1と同様とした。

【0100】(実施例13) インターコネクターにおいて、緻密空気極表面に $\text{La}_{0.80}\text{Ca}_{0.20}\text{CrO}_3$ 、 $\text{NiO}/\text{La}_{0.80}\text{Ca}_{0.20}\text{CrO}_3=50/50$ 、 NiO の順にスラリーコート法で成膜し、1500℃で焼成し、焼成後の厚みが55μm(第一の層:40μm、第二の層:10μm、第三の層:5μm)であること以外は実施例1と同様とした。

	焼成温度/℃	出力(W)	ガス透過量Q ($\times 10^{-10}\text{m}^3\cdot\text{Pa}^{-1}$)
実施例12	1350	29	11.0
実施例2	1400	31	1.0
実施例13	1500	29	0.7
比較例5	1300	24	70.0
比較例6	1550	26	4.5

【0104】表3にインターコネクターの焼成温度に対する出力とインターコネクターガス透過量の結果を示す。焼成温度が1350～1500℃では27W以上でガス透過量も要求される数値を上回っているのに対して、1350℃より温度の低い比較例5では出力、ガス透過量ともに未達であり、1500℃より温度の高い比較例6では出力が未達であった。以上の結果からインターコネクターの焼成温度は1350～1500℃が好ましいことが確認された。

【0105】燃料極について

(実施例14) 燃料極において、 NiO/SSZ を用いた。 SSZ の組成は、90 mol% ZrO_2 -10mol% Sc_2O_3 とし、 NiO/SSZ の重量比率(粉末の平均粒子径)は、電解質側から燃料方向へ NiO/SSZ (平均粒子径)=20/80(0.5μm)、50/50(0.5μm)、70/30(2μm)とした。各々の粉末は、

	燃料極構成	出力(W)	ガス透過量Q ($\times 10^{-10}\text{m}^3\cdot\text{Pa}^{-1}$)
実施例1	NiO/YSZ	30	1.5
実施例14	NiO/SSZ	30.5	1.5

【0107】表4に燃料極の構成層に対する出力とインターコネクターガス透過量の結果を示す。表4に示すように燃料極を NiO/SSZ にした場合、インターコネクターのガス透過量は変わらず、出力性能はむしろ高くなることがわかった。以上の結果から燃料極としては NiO/YSZ あるいは NiO/SSZ のいずれであっても良いことが確認された。

	空気極組成	出力(W)	ガス透過量Q ($\times 10^{-10}\text{m}^3\cdot\text{Pa}^{-1}$)
実施例1	$\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25}\text{MnO}_3$	30	1.5
実施例15	$\text{La}_{0.80}\text{Ca}_{0.20}\text{MnO}_3$	30	1.5

【0110】表5に空気極組成に対する出力とインター

【0101】(比較例5) インターコネクターにおいて、緻密空気極表面に $\text{La}_{0.80}\text{Ca}_{0.20}\text{CrO}_3$ 、 $\text{NiO}/\text{La}_{0.80}\text{Ca}_{0.20}\text{CrO}_3=50/50$ 、 NiO の順にスラリーコート法で成膜し、1300℃で焼成し、焼成後の厚みが55μm(第一の層:40μm、第二の層:10μm、第三の層:5μm)であること以外は実施例1と同様とした。

【0102】(比較例6) インターコネクターにおいて、緻密空気極表面に $\text{La}_{0.80}\text{Ca}_{0.20}\text{CrO}_3$ 、 $\text{NiO}/\text{La}_{0.80}\text{Ca}_{0.20}\text{CrO}_3=50/50$ 、 NiO の順にスラリーコート法で成膜し、1550℃で焼成し、焼成後の厚みが55μm(第一の層:40μm、第二の層:10μm、第三の層:5μm)であること以外は実施例1と同様とした。

【0103】

【表3】

共沈法で作製後熱処理をして得た。これらの粉末100重量部と有機溶媒(エタノール)500重量部、バインダー(エチルセルロース)10重量部、分散剤(ポリオキシエタレンアルキルリン酸エステル)5重量部、消泡剤(ソルビタンセソキオレート)1重量部、可塑剤(DBP)5重量部を混合した後、十分攪拌してスラリーを調整した。このスラリーの粘度は70mPasであった。燃料極の面積が150cm²になるように電解質表面にマスキングをし、 $\text{NiO}/\text{SSZ}=20/80, 50/50, 70/30$ の順にスラリーコート法により成膜しデマスク後、1420℃で焼成し、膜厚(焼成後)が100μmであった以外は実施例1と同様とした。

【0106】

【表4】

【0108】空気極について

(実施例15) 空気極および緻密空気極をCaを固溶させたランタンマンガンナイトとし、組成を $\text{La}_{0.80}\text{Ca}_{0.20}\text{MnO}_3$ 組成とした以外は実施例1と同様とした。

【0109】

【表5】

コネクターガス透過量の結果を示す。この結果からいず

れを用いても差が無く、空気極としてはSrまたはCaを固溶させたランタンマンガンナイトが好ましいことが確認された。

【0111】電解質について

(実施例16) 電解質をSSZとし、該組成を90 mol%ZrO

	電解質組成	出力(W)	ガス透過量Q ($\times 10^{-10} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-1}$)
実施例1	YSZ	30	1.5
実施例16	SSZ	30.5	1.5

【0113】表6に電解質組成に対する出力とインターコネクターガス透過量の結果を示す。電解質にSSZを用いるとインターコネクターのガス透過量は変わらないが、出力性能がYSZの場合と比較してむしろ良くなる結果が得られた。以上の結果から電解質としてはYSZまたはSSZであることが好ましいことが確認された。

【0114】

【発明の効果】以上の説明から明らかなように、固体電解質型燃料電池のインターコネクターが空気極側から燃料極側に向かって、 LaMCrO_3 (但し、 $\text{M}=\text{Ca}, \text{Sr}$ のいずれか) で表されるCaまたはSrを固溶させたランタクロマイトからなる第一の層と、前記 LaMCrO_3 とNiOが均一に混合された層からなる第二の層と、からなるのでインターコネクターの電子導電性が高く、出力性能が高い固体電解質型燃料電池を提供できる。以上の説明から明らかなように、固体電解質型燃料電池のインターコネクターが空気極側から燃料極側に向かって、 LaMCrO_3 (但し、 $\text{M}=\text{Ca}, \text{Sr}$ のいずれか) で表されるCaまたはSrを固溶させたランタクロマイトからなる第一の層と、前記 LaMCrO_3 とNiOが均一に混合された層からなる第二の層と、NiOからなる

ZrO_2 -10mol% Sc_2O_3 であるものを用いた以外は実施例1と同様とした。

【0112】

【表6】

第三の層と、からなるのでインターコネクターの電子導電性が高く、集電材との接触抵抗が小さいので、出力性能が高い固体電解質型燃料電池を提供できる。また、固体電解質型燃料電池を大気雰囲気下にて焼成できるので、焼成コストが安価な固体電解質型燃料電池を提供できる。

【図面の簡単な説明】

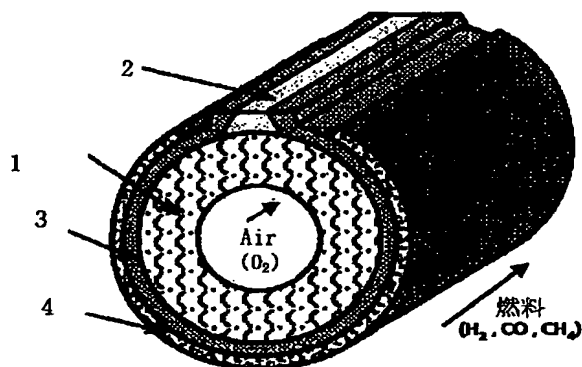
【図1】円筒タイプの固体電解質型燃料電池の断面を示す図である。

【図2】図1に示す固体電解質型燃料電池の空気極、電解質および燃料極構成について詳細に示した断面図である。

【符号の説明】

- 1：空気極支持体
- 2：インターコネクター
- 3：電解質
- 4：燃料極
- 5：集電材
- 6：集電板

【図1】



【図2】

